

Rec'd PCT/PTO 28 FEB 2003
PCT/JP 03/09735

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

31.07.03
REC'D 19 SEP 2003
WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2003年 7月10日

出 願 番 号
Application Number: 特願2003-195398
[ST. 10/C]: [JP 2003-195398]

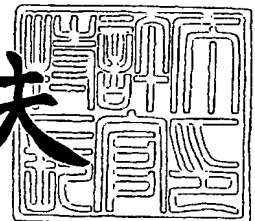
出 願 人
Applicant(s): TDK株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 9月 5日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 99P05736

【提出日】 平成15年 7月10日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01F 1/34

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社
内

【氏名】 福地 英一郎

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社
内

【氏名】 高川 建弥

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社
内

【氏名】 村瀬 琢

【特許出願人】

【識別番号】 000003067

【氏名又は名称】 TDK株式会社

【その他】 平成15年 6月27日付けで名称変更届を提出しております。

【代理人】

【識別番号】 100100077

【弁理士】

【氏名又は名称】 大場 充

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 085823

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 フェライト材料

【特許請求の範囲】

【請求項1】 Fe_2O_3 ：62～68mol%、 ZnO ：12～20mol%、 NiO ：5mol%以下（但し、0を含まず）、 $\text{LiO}_{0.5}$ ：4mol%未満（但し、0を含まず）、残部実質的に MnO を主成分とする焼結体からなることを特徴とするフェライト材料。

【請求項2】 100℃における飽和磁束密度が480mT以上（測定磁界：1194A/m）であることを特徴とする請求項1に記載のフェライト材料。

【請求項3】 コア損失が最小値を示す温度であるボトム温度が60～130℃の範囲に存在することを特徴とする請求項1または2に記載のフェライト材料。

【請求項4】 コア損失の最小値が1300kW/m³以下（測定条件：100kHz、200mT）であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載のフェライト材料。

【請求項5】 コア損失の最小値が1200kW/m³以下（測定条件：100kHz、200mT）であり、かつ100℃における飽和磁束密度が490mT以上（測定磁界：1194A/m）であることを特徴とする請求項4に記載のフェライト材料。

【請求項6】 第1副成分として、Siを SiO_2 換算で250ppm以下（但し、0を含まず）およびCaを CaCO_3 換算で2500ppm以下（但し、0を含まず）を含むことを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載のフェライト材料。

【請求項7】 前記 SiO_2 の含有量と前記 CaCO_3 の含有量との重量比（ SiO_2 の含有量/ CaCO_3 の含有量）が0.04～0.25であることを特徴とする請求項6に記載のフェライト材料。

【請求項8】 第2副成分として、 Nb_2O_5 ：400ppm以下（但し、0を含まず）、 ZrO_2 ：1000ppm以下（但し、0を含まず）、 Ta_2O_5 ：1000ppm以下（但し、0を含まず）、 In_2O_5 ：1000ppm以下（但

し、0を含まず)、 Ga_2O_5 :1000ppm以下(但し、0を含まず)の一種または二種以上を含むことを特徴とする請求項1~7のいずれかに記載のフェライト材料。

【請求項9】 第3副成分として、 SnO_2 :10000ppm以下(但し、0を含まず)および TiO_2 :10000ppm以下(但し、0を含まず)の一種または二種を含むことを特徴とする請求項1~8のいずれかに記載のフェライト材料。

【請求項10】 第4副成分として、P換算でのPの化合物:35ppm以下(但し、0を含まず)、 MoO_3 :1000ppm以下(但し、0を含まず)、 V_2O_5 :1000ppm以下(但し、0を含まず)、 GeO_2 :1000ppm以下(但し、0を含まず)、 Bi_2O_3 :1000ppm以下(但し、0を含まず)、 Sb_2O_3 :3000ppm以下(但し、0を含まず)の一種または二種以上を含むことを特徴とする請求項1~9のいずれかに記載のフェライト材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、トランス、リアクタ、チョークコイル等の電子部品に好適に用いられるフェライト材料に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、電子機器の小型化、高出力化が進んでいる。それに伴い各種部品の高集積化、高速処理化が進み、電力を供給する電源ラインの大電流化が要求されている。

また、高温下においても所定の性能を保つ電源ラインが要求されている。これは、電源ラインが、部品(例えばCPU)などからの発熱にさらされる場合があるためである。また、電源ラインは、自動車用電子回路のように使用環境温度の高い条件においても、所定の性能を保つ必要がある。

したがって、電源ラインに用いられるトランスやリアクタにも、高温下において大電流で使用できるものが求められる。

これらトランスやリアクタに使用される材料としては、軟磁性金属材料とフェライト材料がある。さらに、フェライト材料は、MnZn系フェライトとNi系フェライトに分類される。

軟磁性金属材料はフェライトに比べて飽和磁束密度が高いため、より大きな電流を流しても磁気飽和をおこさない。しかしながら、軟磁性金属材料は、一般的に損失が高い、値段が高い、比重が高い、防錆性に劣るといった問題がある。

一方、フェライトはコストパフォーマンスに優れ、数10kHzから数100kHzの周波数帯域において損失が低いという利点がある。また、MnZn系フェライトは、Ni系フェライトよりも飽和磁束密度が高い。このため、大電流用のトランスおよびチョークコイル（以下、両者を総称して、「トランス等」ということがある）には、MnZn系フェライトが一般的に使用されている。しかしながら、近年、より高温域、具体的には100℃近傍で使用される場合にも、高い飽和磁束密度を示すフェライト材料が求められている。上述のように、MnZn系フェライトはNi系フェライトよりも高い飽和磁束密度を示すものの、100℃近傍の高温域（以下、単に高温域という）では飽和磁束密度が不十分であった。

【0003】

そこで、高温域における飽和磁束密度を向上するための検討が種々行われている。その中で例えば、特開2000-159523号公報（特許文献1）には、酸化鉄の含有量が60～75mol%、酸化亜鉛の含有量が0～20mol%（但し、0を含まず）および残部が酸化マンガンからなり、100℃での飽和磁束密度が450mT以上であり、かつ50kHz、150mTでのコア損失の最小値が1500kW/m³以下であるフェライト焼結体が開示されている。

また、特公昭63-59241号公報（特許文献2）には、酸化マンガンの含有量が13～50mol%、酸化亜鉛の含有量が0～20mol%（但し、0を含まず）、酸化ニッケル、酸化マグネシウム、酸化リチウムのうち少なくとも一種を0～26mol%、残部が酸化鉄45mol%以上からなる基本組成を有する500G以上の磁界中にて高温下駆動されるフェライト磁心が開示されている。

【0004】

【特許文献1】

特開 2000-159523 号公報 (特許請求の範囲)

【特許文献2】

特公昭 63-59241 号公報 (特許請求の範囲)

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

特開 2000-159523 号公報に開示されたフェライト焼結体は、 $MnZn$ 系フェライトの鉄量を増加することにより、高温域で高飽和磁束密度を実現しているが、より高い飽和磁束密度を示すフェライト材料が求められている。また、特開 2000-159523 号公報に開示された材料のうちで比較的損失が低い材料は、損失値が最小を示す温度 (本明細書中でボトム温度という) が $20^{\circ}C$ 近傍にある。この材料は、一般的なトランス、リアクタ用コアが使用される温度帯域である $60 \sim 130^{\circ}C$ において、損失の温度依存性が正の傾きになり、自己発熱による熱暴走の危険性を含んでいる。

【0006】

前述した特公昭 63-59241 号公報に開示されたフェライト磁心は、 $150^{\circ}C$ 以上の温度域での低損失化を図っているが、飽和磁束密度に関する考慮はなされていない。また、ボトム温度が $150^{\circ}C$ 以上であるため一般的なトランス等が使用される温度帯域 ($60 \sim 130^{\circ}C$) では、損失、初透磁率の劣化を招く。

本発明は、このような技術的課題に基づいてなされたもので、一般的なトランス等が使用される温度帯域における飽和磁束密度が高く、かつ損失が低いフェライト材料の提供を課題とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記課題を解決するために種々様々な検討を行った。その結果、フェライト材料を構成する成分として、所定量の Ni および Li をともに含有させることにより、高温域における飽和磁束密度が向上することを知見した。すなわち、本発明は、 $Fe_2O_3: 62 \sim 68 mol\%$ 、 $ZnO: 12 \sim 20 mol\%$

、 NiO ：5mol%以下（但し、0を含まず）、 $\text{LiO}_{0.5}$ ：4mol%未満（但し、0を含まず）、残部実質的に MnO を主成分とする焼結体からなることを特徴とするフェライト材料を提供する。本発明者の検討によると、 Ni および Li を複合して含有させることで、コア損失の増加を抑制しつつ、飽和磁束密度を向上させることができる。なお、 Li 酸化物は、 Li_2O と表記されるが、 Li 換算にて組成を計算するために、本発明では Li 酸化物を「 $\text{LiO}_{0.5}$ 」と表記する。

本発明のフェライト材料は、 100°C における飽和磁束密度が 480mT 以上（測定磁界： 1194A/m ）であるという優れた特性を備えることができる。また、本発明のフェライト材料は、コア損失が最小値を示す温度であるボトム温度が $60\sim 130^\circ\text{C}$ の範囲に存在する。つまり、本発明のフェライト材料は、一般的なトランス等が使用される温度帯域にボトム温度を設定することができる。

【0008】

また、本発明のフェライト材料は、コア損失の最小値が 1300kW/m^3 以下（測定条件： 100kHz 、 200mT ）という特性を備えることができる。

さらにまた、本発明のフェライト材料は、コア損失の最小値を 1200kW/m^3 以下（測定条件： 100kHz 、 200mT ）とし、かつ 100°C における飽和磁束密度を 490mT 以上（測定磁界： 1194A/m ）とすることができる。これまで、 MnZn 系フェライトの特性を向上させるために、様々なアプローチがなされてきたことは上述の通りである。しかしながら、従来のアプローチでは、飽和磁束密度の向上という効果が得られると、その一方でコア損失の値の増加という不利益を招いていた。もしくは、低損失という効果が得られても、ボトム温度が一般的なトランス等が使用される温度帯域（ $60\sim 130^\circ\text{C}$ ）外となるという弊害が生じていた。これに対し、 NiO および $\text{LiO}_{0.5}$ をそれぞれ所定量ずつ含有することを特徴とする本発明のフェライト材料によれば、高温域における高飽和磁束密度という特性と、一般的なトランス等が使用される温度帯域（ $60\sim 130^\circ\text{C}$ ）での低損失という特性を兼備することができる。

【0009】

本発明のフェライト材料において、第1副成分として、SiをSiO₂換算で250ppm以下（但し、0を含まず）およびCaをCaCO₃換算で2500ppm以下（但し、0を含まず）を含むことが望ましい。ここで、第1副成分として、SiおよびCaを含有させる場合には、Si、CaをそれぞれSiO₂換算、CaCO₃換算でSiO₂/CaCO₃（重量比）が0.04～0.25になるように設定することが有効である。

【0010】

上述した本発明のフェライト材料において、さらに、第2副成分として、Nb₂O₅:400ppm以下（但し、0を含まず）、ZrO₂:1000ppm以下（但し、0を含まず）、Ta₂O₅:1000ppm以下（但し、0を含まず）、In₂O₅:1000ppm以下（但し、0を含まず）、Ga₂O₅:1000ppm以下（但し、0を含まず）の一種または二種以上を含むことが望ましい。

さらにまた、第3副成分として、SnO₂:10000ppm以下（但し、0を含まず）およびTiO₂:10000ppm以下（但し、0を含まず）の一種または二種を含むことができる。

【0011】

ところで、フェライト材料において高い飽和磁束密度を得るためには、主組成中のFe量を増加させることが有効である。その一方で、Fe量の増加に伴い、焼結が進みにくくなるため、Fe-rich組成を選択した場合には、焼成温度を上昇させる必要がある。ところが、焼成温度を上昇させると、Zn成分が蒸発してしまい、コア損失が大きくなってしまう。さらに、焼成温度を上昇させることは、使用エネルギーの増大、使用炉材のコスト上昇等を招き、工業的にデメリットとなりうる。こうしたデメリットを排除しつつ、高温域における飽和磁束密度が高く、かつ低損失のフェライト材料を得るため、本発明者は様々な検討を行った。その結果、以下に述べる第4副成分が、低温焼成に有効に寄与することを知見した。

すなわち、本発明のMnZnNiLi系フェライト材料において、第4副成分として、P換算でのPの化合物:35ppm以下（但し、0を含まず）、MoO₃:1000ppm以下（但し、0を含まず）、V₂O₅:1000ppm以下（

但し、0を含まず)、 GeO_2 :1000ppm以下(但し、0を含まず)、 Bi_2O_3 :1000ppm以下(但し、0を含まず)、 Sb_2O_3 :3000ppm以下(但し、0を含まず)の一種または二種以上を含むことが望ましい。これらの第4副成分を含有させることで、1350℃以下、さらには1300℃近傍という比較的低温での焼成が可能となる。詳しくは後述するが、第4副成分を本発明が推奨する範囲で含有させることによって、1350℃以下で焼成した場合にも、高温域における飽和磁束密度が高く、かつ低損失のフェライト材料を得ることが可能となる。

【0012】

【発明の実施の形態】

はじめに、本発明における成分の限定理由を説明する。 Fe_2O_3 の量を増加すると高温域における飽和磁束密度が向上する一方、コア損失が劣化する傾向にある。 Fe_2O_3 が62mol%より少ないと高温域における飽和磁束密度が低下する。一方、 Fe_2O_3 が68mol%を超えるとコア損失の増大が顕著となる。したがって、本発明では Fe_2O_3 を62～68mol%とする。この範囲では、 Fe_2O_3 量の増加に伴ってボトム温度は高温側へシフトするが、 Fe_2O_3 量が62～68mol%の範囲内にある場合には、ボトム温度を60～130℃の範囲に設定することができる。望ましい Fe_2O_3 の量は63～67mol%、さらに望ましい Fe_2O_3 の量は63～66mol%である。

【0013】

ZnO の量も飽和磁束密度およびコア損失に影響を与える。 ZnO が12mol%より少ないと飽和磁束密度が低下するとともに、損失が大きくなる。また、 ZnO が20mol%を超えても飽和磁束密度が低下するとともに、損失が大きくなる。したがって本発明では ZnO を12～20mol%とする。 ZnO 量の増加に伴ってボトム温度は高温側へシフトするが、 ZnO 量が12～20mol%の範囲内にある場合には、ボトム温度を60～130℃の範囲に設定することができる。望ましい ZnO の量は13～19mol%、さらに望ましい ZnO の量は14～18mol%である。

【0014】

NiOは、キュリー温度の上昇に伴い飽和磁束密度を向上させるのに有効である。但し、NiOの含有量が5mol%を超えると、損失が大きくなる。したがって本発明では、飽和磁束密度の向上および低損失という効果を享受するために、NiOを5mol%以下（但し、0を含まず）の範囲内で含有させる。望ましいNiOの量は0.2～5mol%、さらに望ましいNiOの量は0.5～4mol%である。

【0015】

LiO_{0.5}は、100℃における飽和磁束密度を向上させるのに有効である。但し、4mol%以上を超えて含有させると、損失が大きくなるとともに、100℃における飽和磁束密度が添加前と同等以下のレベルまで低下してしまう。したがって本発明では、LiO_{0.5}の量を4mol%未満とする。望ましいLiO_{0.5}の量は0.2～3.5mol%、さらに望ましいLiO_{0.5}の量は0.5～3mol%である。

NiOおよびLiO_{0.5}の合計量は、0.2～5mol%とすることが望ましい。より望ましいNiOおよびLiO_{0.5}の合計量は、0.5～4mol%、さらに望ましいNiOおよびLiO_{0.5}の合計量は、1～3mol%である。

本発明のフェライト材料は主成分として、上記以外に実質的な残部としてMnOを含む。

【0016】

つぎに、副成分の限定理由について説明する。

本発明のフェライト材料は、第1副成分としてSiをSiO₂換算で250ppm以下（但し、0を含まず）およびCaをCaCO₃換算で2500ppm以下（但し、0を含まず）の範囲内で含むことができる。SiおよびCaは、結晶粒界に偏析して高抵抗層を形成して低損失に寄与するとともに焼結助剤として焼結密度を向上する効果を有する。SiがSiO₂換算で250ppmを超え、あるいはCaがCaCO₃換算で2500ppmを超えると、不連続異常粒成長による損失の劣化が大きい。そこで本発明では、SiをSiO₂換算で250ppm以下、CaをCaCO₃換算で2500ppm以下とする。一方、SiがSiO₂換算で80ppm未満、あるいはCaがCaCO₃換算で800ppm未満で

は上記効果を十分に得ることができないため、SiはSiO₂換算で80ppm以上、CaはCaCO₃換算で800ppm以上、含有させることが望ましい。さらに望ましいSiおよびCaの含有量はSiはSiO₂換算で80～200ppm、CaはCaCO₃換算で1000～1800ppm、より望ましいSiおよびCaの含有量はSiはSiO₂換算で80～150ppm、CaはCaCO₃換算で1200～1700ppmである。

低損失に寄与し、かつ焼結助剤として焼結密度を向上する効果を有するとともに、所定量のSiおよびCaの含有は、高温域における飽和磁束密度の向上にも有効に寄与する。

【0017】

また、SiとCaを複合添加する場合には、Si、CaをそれぞれSiO₂換算、CaCO₃換算でSiO₂/CaCO₃（重量比）が0.04～0.25、より望ましくは0.05～0.2の範囲になるように設定することが有効である。

【0018】

本発明は第2副成分として、Nb₂O₅：400ppm以下（但し、0を含まず）、ZrO₂：1000ppm以下（但し、0を含まず）、Ta₂O₅：1000ppm以下（但し、0を含まず）、In₂O₅：1000ppm以下（但し、0を含まず）、Ga₂O₅：1000ppm以下（但し、0を含まず）の一種または二種以上を含むことができる。これらの第2副成分を含有することによって、飽和磁束密度の向上および／または損失低減という効果を得ることができる。その効果を十分に享受するためには、Nb₂O₅、ZrO₂、Ta₂O₅、In₂O₅、Ga₂O₅は50ppm以上含有させることが望ましい。さらに望ましい含有量は、Nb₂O₅：80～300ppm、ZrO₂、Ta₂O₅、In₂O₅、Ga₂O₅は200～800ppmである。なお、第2副成分を複合して添加する場合、添加量の合計は1000ppm以下とすることが望ましい。

【0019】

本発明は第3副成分として、SnO₂：10000ppm以下（但し、0を含まず）およびTiO₂：10000ppm以下（但し、0を含まず）の一種または二種を含むことができる。SnO₂およびTiO₂は、結晶粒内、結晶粒界に存

在し損失低減の効果がある。10000 ppmを超えると、不連続異常粒成長による損失の劣化や飽和磁束密度の低下を招く。そのために本発明では、 SnO_2 および TiO_2 の上限値を各々 10000 ppm とする。一方、以上の効果を十分享受するためには、第 3 副成分を 500 ppm 以上含有させることが望ましい。さらに望ましい SnO_2 および TiO_2 の量は 1000～8000 ppm、より望ましい SnO_2 および TiO_2 の含有量は 1000～7000 ppm である。なお、第 3 副成分を複合して添加する場合、添加量の合計は 10000 ppm 以下とすることが望ましい。

【0020】

本発明は第 4 副成分として、P 換算での P の化合物：35 ppm 以下（但し、0 を含まず）、 MoO_3 ：1000 ppm 以下（但し、0 を含まず）、 V_2O_5 ：1000 ppm 以下（但し、0 を含まず）、 GeO_2 ：1000 ppm 以下（但し、0 を含まず）、 Bi_2O_3 ：1000 ppm 以下（但し、0 を含まず）、 Sb_2O_3 ：3000 ppm 以下（但し、0 を含まず）の一種または二種以上を含むことができる。第 4 副成分は、焼結助剤として焼結密度を向上させる効果を有するとともに、低温焼成に寄与する。具体的には、第 4 副成分を本発明が推奨する範囲内で含めることにより、1340℃以下、さらには約 1300℃という比較的低温で焼成を行った場合にも、95%以上の相対密度、480 mT 以上の飽和磁束密度（測定磁界：1194 A/m）、かつコア損失の最小値を 1300 kW/m³以下（測定条件：100 kHz、200 mT）とすることが可能となる。その効果を十分に享受するためには、 MoO_3 、 V_2O_5 、 GeO_2 、 Bi_2O_3 、 Sb_2O_3 は 50 ppm 以上、P 換算での P の化合物は 5 ppm 以上含有されることが望ましい。

【0021】

より望ましい含有量は、 MoO_3 、 V_2O_5 については 700 ppm 以下、 GeO_2 、 Bi_2O_3 については 600 ppm 以下である。 MoO_3 、 V_2O_5 のさらに望ましい含有量は 100～600 ppm、 GeO_2 、 Bi_2O_3 のさらに望ましい含有量は 100～600 ppm である。また、P 換算での P の化合物の望ましい含有量は 25 ppm 以下、さらに望ましい含有量は 5～20 ppm である。 Sb_2

O₃についての望ましい含有量は2500 ppm以下、さらに望ましい含有量は200～2000 ppmである。なお、第4副成分を複合して添加する場合、添加量の合計は2500 ppm以下とすることが望ましい。

【0022】

本発明のフェライト材料は、上述した組成を適宜選択することにより、100℃における飽和磁束密度を480 mT以上（測定磁界：1194 A/m）、かつコア損失が最小値を示す温度であるボトム温度を60～130℃の範囲に存在させることができる。さらに、100℃における飽和磁束密度を490 mT以上（測定磁界：1194 A/m）、かつコア損失の最小値を1300 kW/m³以下（測定条件：100 kHz、200 mT）とすることができる。特に、望ましい組成を選択することにより、コア損失の最小値を1200 kW/m³以下（測定条件：100 kHz、200 mT）としつつ、100℃における飽和磁束密度が500 mT以上（測定磁界：1194 A/m）という従来では得ることのできなかった特性を得ることもできる。

【0023】

本発明のフェライト材料は、以上の特性に加えて、ボトム温度を60～130℃、さらには70～120℃、望ましくは80～120℃の範囲に設定することができる。したがって、本発明のフェライト材料を用いたフェライト部品は、その実用的な使用温度帯域にボトム温度が存在することになる。しかも本発明のフェライト材料は、室温における初透磁率が600、さらには700以上という高い値を有している。

【0024】

次に、本発明によるフェライト材料にとって好適な製造方法を説明する。

主成分の原料としては、酸化物または加熱により酸化物となる化合物の粉末を用いる。具体的には、Fe₂O₃粉末、Mn₃O₄粉末、ZnO粉末、NiO粉末およびLi₂CO₃粉末等を用いることができる。各原料粉末の平均粒径は0.1～3.0 μmの範囲で適宜選択すればよい。

主成分の原料粉末を湿式混合した後、仮焼きを行う。仮焼きの温度は800～1000℃の範囲内での所定温度で、また雰囲気はN₂または大気とすればよい。

。仮焼きの安定時間は0.5～5.0時間の範囲で適宜選択すればよい。仮焼き後、仮焼き体を例えば、平均粒径0.5～2.0 μm 程度まで粉碎する。なお、本発明では、上述の主成分の原料に限らず、2種以上の金属を含む複合酸化物の粉末を主成分の原料としてもよい。例えば、塩化鉄、塩化マンガンを含む水溶液を酸化培焼することによりFe、Mnを含む複合酸化物の粉末が得られる。この粉末とZnO粉末を混合して主成分原料としてもよい。このような場合には、仮焼きは不要である。

【0025】

同様に副成分の原料として、酸化物または加熱により酸化物となる化合物の粉末を用いることもできる。具体的には、 SiO_2 、 CaCO_3 、 Nb_2O_5 、 ZrO_2 、 Ta_2O_5 、 In_2O_5 、 Ga_2O_5 、 SnO_2 、 TiO_2 、 MoO_3 、 V_2O_5 、 GeO_2 、 Bi_2O_3 、 Sb_2O_3 等を用いることができる。また、第4副成分としてP化合物を選択する場合には、加熱によりP化合物が得られる粉末、例えば $(\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2)$ 等を用いることができる。これら副成分の原料粉末は、仮焼き後に粉碎された主成分の粉末と混合される。但し、主成分の原料粉末と混合した後に、主成分とともに仮焼きに供することもできる。

【0026】

主成分および副成分からなる混合粉末は、後の成形工程を円滑に実行するために顆粒に造粒される。造粒は例えばスプレードライヤを用いて行うことができる。混合粉末に適当な結合材、例えばポリビニルアルコール(PVA)を少量添加し、これをスプレードライヤで噴霧、乾燥する。得られる顆粒の粒径は80～200 μm 程度とすることが望ましい。

【0027】

得られた顆粒は、例えば所定形状の金型を有するプレスを用いて所望の形状に成形され、この成形体は焼成工程に供される。

焼成工程においては、焼成温度と焼成雰囲気を制御する必要がある。

焼成温度は1250～1450℃の範囲から適宜選択することができるが、本発明のフェライト材料の効果を十分引き出すには、1300～1400℃の範囲で焼成することが望ましい。

【0028】

本発明によるフェライト材料は、93%以上、さらに望ましくは95%以上の相対密度を得ることができる。

本発明によるフェライト材料は、平均結晶粒径は5～30 μm の範囲とすることが望ましい。結晶粒径が小さいとヒステリシス損失が大きくなり、一方結晶粒径が大きいと渦電流損失が大きくなるからである。望ましい平均結晶粒径は8～25、より望ましい平均結晶粒径は10～20 μm である。

【0029】

【実施例】

以下、本発明を具体的な実施例に基づいて説明する。

(第1実施例)

表1に示す組成を有するフェライトコアを作製した。

主成分の原料として、 Fe_2O_3 粉末、 MnO 粉末、 ZnO 粉末、 NiO 粉末および Li_2CO_3 粉末を用いた。これらの粉末を湿式混合した後、900℃で2時間仮焼した。

次いで、主成分の原料の仮焼物と副成分の原料とを混合した。副成分の原料として、 SiO_2 粉末、 CaCO_3 粉末、 Nb_2O_5 粉末を用いた。主成分原料の仮焼物に副成分の原料を添加して、粉碎しながら混合した。粉碎は、仮焼物の平均粒径が約1.5 μm となるまで行った。得られた混合物にバインダを加え、顆粒化した後、成形してトロイダル形状の成形体を得た。

得られた成形体を酸素分圧制御下において、温度1350℃（安定部5時間、安定部酸素分圧1%）で焼成することにより、フェライトコアを得た。

また、このフェライトコアを用いて、100℃における飽和磁束密度（ B_s 、測定磁界：1194 A/m）、コア損失の最小値（ P_{cv} 、測定条件：100 kHz、200 mT）、初透磁率（ μ_i 、測定温度：25℃、測定周波数100 kHz）を測定した。その結果を表1に併せて示す。

なお、比較の便宜のために、表1中には、従来例1～4として特開2000-159523号公報に開示されたMnZn系フェライト材料の特性等を、従来例5、6として特公昭63-59241号公報に開示されたMnZn系フェライト

材料の特性等を示している。

【0030】

【表1】

試料No.	Fe ₂ O ₃ (mol%)	MnO (mol%)	ZnO (mol%)	NiO (mol%)	LiO _{0.5} (mol%)	Bs (mT)	Pcv (kW/m ³)	B.Temp. (°C)	μi	副成分	焼成温度 (°C)
比較例1	60.0	22.0	15.0	1.0	2.0	462	1433	80	831	SiO ₂ :100ppm CaCO ₃ :1500ppm Nb ₂ O ₅ :200ppm * SiO ₂ の含有量とCaCO ₃ の含有 量との重量比=0.07	1350
1	63.0	17.5	18.0	1.0	0.5	494	714	100	1155		
2	67.0	19.5	12.5	0.5	0.5	507	1167	80	803		
比較例2	70.0	14.5	14.5	0.5	0.5	475	2971	100	350		
比較例3	67.0	21.0	10.0	1.0	1.0	479	1303	100	675		
3	65.0	19.0	14.0	1.0	1.0	510	951	100	890		
4	64.0	16.5	18.0	0.5	1.0	504	901	120	732		
比較例4	64.5	13.5	21.0	0.5	0.5	470	1125	140	489		
2	67.0	19.5	12.5	0.5	0.5	507	1167	80	803		
5	64.0	17.8	14.0	4.0	0.2	512	976	100	862		
比較例5	64.0	16.0	13.5	6.0	0.5	504	1443	120	604		
2	67.0	19.5	12.5	0.5	0.5	507	1167	80	803	SiO ₂ :80ppm, CaCO ₃ :700ppm, Nb ₂ O ₅ :250ppm, Ta ₂ O ₅ :50ppm	1300
6	64.0	17.5	16.0	0.5	2.0	504	1026	100	799		
比較例6	64.0	17.5	14.0	0.5	4.0	481	1616	140	520		
従来例1	70.0	15.0	15.0	-	-	470	3207	140	220		
従来例2	60.0	25.0	15.0	-	-	456	1431	20	1300	SiO ₂ :100ppm, CaCO ₃ :700ppm, Ta ₂ O ₅ :300ppm	1300
従来例3	70.0	10.0	20.0	-	-	468	2618	140	250		
従来例4	70.0	10.0	20.0	-	-	503	1846	100	490	-	1250
従来例5	54.0	25.0	11.0	10.0	-	-	-	240	-		
従来例6	54.0	25.0	11.0	-	10 (LiO)	-	-	250	-	-	1350

Bs : 飽和磁束密度 (100°C)

Pcv : ボトム温度におけるコア損失 (100kHz, 200mT)

B.Temp. : ボトム温度

μi : 初透磁率 (25°C)

【0031】

表1に示すように、本発明によるフェライト材料は、いずれもボトム温度を80～120℃の範囲内に設定することが可能であるとともに、従来例1～3よりも高い480mT以上の飽和磁束密度を有している。その上、本発明によるフェライト材料は、コア損失が1300kW/m³以下となっており、従来例対比、コア損失が相当程度低減されていることがわかる。

従来例4は503mTという高い飽和磁束密度を得ているものの、コア損失が1800kW/m³以上と大きく、また初透磁率も500未満の値を示す。これに対し、本発明によるフェライト材料によれば、480mT以上の飽和磁束密度および1300kW/m³以下のコア損失、600以上の初透磁率を兼備することが可能である。

【0032】

比較例1，試料No. 1，試料No. 2および比較例2は、この順にFe₂O₃が増加している。その中で、Fe₂O₃が60.0mol%と本発明の範囲より少ない場合、および70.0mol%と本発明の範囲より多い場合には、480mT以上の高い飽和磁束密度が得ることができず、かつコア損失が大きいことがわかる。

次に、比較例3，試料No. 3，試料No. 4および比較例4は、この順にZnOが増加している。その中で、ZnOが10.0mol%と本発明の範囲より少ない場合に、コア損失が大きいことがわかる。一方、ZnOが21.0mol%と本発明の範囲より多い場合には、ボトム温度を80～120℃の範囲内に設定することができない。

【0033】

試料No. 2，試料No. 5および比較例5は、この順にNiOが増加している。これらの特性に着目すると、NiO量の変動により、コア損失や飽和磁束密度が変動することがわかる。また、NiO量の増加に伴い、ボトム温度が高温側にシフトすることがわかる。

NiO量が0.5mol%の試料No. 2、NiO量が4.0mol%の試料No. 5が、特に高い飽和磁束密度を示していること、NiO量が6.0mol%の比較例5のコア損失が1300kW/m³を超えることを考慮して、NiO

の含有量を設定する必要がある。 NiO の含有量は $0.2 \sim 5 \text{ mol} \%$ 、さらには $2 \sim 4 \text{ mol} \%$ 近傍とすることが最も望ましい。

【0034】

試料No. 2, 試料No. 6および比較例6は、この順に $\text{LiO}_{0.5}$ 量が増加している。これらの特性に着目すると $\text{LiO}_{0.5}$ 量の変動により、飽和磁束密度やコア損失およびボトム温度が変動することがわかる。

まず、ボトム温度に着目すると、 $\text{LiO}_{0.5}$ 量の増加に伴い、ボトム温度が高温側にシフトすることがわかる。 $\text{LiO}_{0.5}$ 量が $4 \text{ mol} \%$ の比較例6は、ボトム温度を所望の範囲内($60 \sim 130^\circ\text{C}$)に設定することができない。また比較例6は、コア損失が 1600 kW/m^3 以上と大きいことを考慮して、 $\text{LiO}_{0.5}$ 量は $4 \text{ mol} \%$ 未満とする。

一方、 $\text{LiO}_{0.5}$ 量が $0.5 \text{ mol} \%$ の試料No. 2および $\text{LiO}_{0.5}$ 量が $2 \text{ mol} \%$ の試料No. 6によれば、ボトム温度を $80 \sim 100^\circ\text{C}$ と、所望の範囲内とすることができる。しかも、試料No. 2および試料No. 6はいずれもコア損失を 1200 kW/m^3 以下としつつ、 500 mT 以上という高い飽和磁束密度を得ている。よって、 $\text{LiO}_{0.5}$ の含有量は $4 \text{ mol} \%$ 未満、さらには $0.2 \sim 3 \text{ mol} \%$ 程度とすることが望ましい。

【0035】

以上の結果より、ボトム温度を $60 \sim 130^\circ\text{C}$ 、さらには $80 \sim 120^\circ\text{C}$ の範囲内に設定しつつ、高飽和磁束密度および低コア損失という効果を享受するためには、 Fe_2O_3 を $62 \sim 68 \text{ mol} \%$ の範囲、 ZnO を $12 \sim 20 \text{ mol} \%$ の範囲、 NiO を $5 \text{ mol} \%$ 以下(但し、0を含まず)、 $\text{LiO}_{0.5}$ を $4 \text{ mol} \%$ 未満(但し、0を含まず)の範囲に設定することが重要であることが確認された。また、初透磁率(μ_i)についても、本発明による試料はいずれも700以上という高い値を示す。

【0036】

ここで、表1には、従来例5として、主組成に Ni を含有する MnZnNi 系フェライト材料のボトム温度を示している。また、従来例6として、主組成に Li を含有する MnZnLi 系フェライト材料のボトム温度を示している。 NiO

を 5 mol % 以下（但し、0 を含まず）および $\text{LiO}_{0.5}$ を 4 mol % 未満（但し、0 を含まず）の範囲内で含有する本発明の試料 No. 1～6 では、ボトム温度を 80～120℃ の範囲内に設定することができたのに対し、従来例 5、6 はいずれもボトム温度が 240℃ 以上と高く、本発明が所望としている範囲内（60～130℃）にボトム温度を設定することができていない。このことから、主組成を構成する成分の選択のみならず、その組合せ、および各成分の含有量がボトム温度等の特性を大きく左右していることがわかる。

【0037】

（第 2 実施例）

第 1 実施例と同様の工程により、表 2 に示す組成を有するフェライトコアを製作するとともに、第 1 実施例と同様に特性等を測定した。その結果を表 2 に併せて示す。

【0038】

【表 2】

試料No.	第 1 副成分		SiO_2 の含有量と CaCO_3 の含有量 との重量比	B_s (mT)	P_{cv} (kW/m ³)	B.Temp. (°C)	μ_i
	SiO_2 (ppm)	CaCO_3 (ppm)					
7	100	1500	0.07	510	951	100	890
8	200	1500	0.13	512	1033	100	804
9	150	2000	0.08	510	986	100	811

焼成 : 1350℃、酸素分圧 1%

B_s : 飽和磁束密度 (100℃)

B.Temp. : ボトム温度

P_{cv} : ボトム温度におけるコア損失 (100kHz, 200mT)

μ_i : 初透磁率 (25℃)

主成分 : Fe_2O_3 : 65 mol% MnO : 19 mol%
 ZnO : 14 mol% NiO : 1 mol% $\text{LiO}_{0.5}$: 1 mol%

副成分 : Nb_2O_5 : 200ppm

【0039】

表 2 から、第 1 副成分としての Si および Ca の添加量の変動に伴い、飽和磁束密度、コア損失および初透磁率が変動することがわかる。

試料 No. 7、8 は、Si の添加量が異なる点を除けば、フェライト焼結体における組成は等しい。ところが、 SiO_2 換算で Si を 200 ppm 含有する試

料No. 7の方が、 SiO_2 換算でSiを100ppm含有する試料No. 8よりも高い飽和磁束密度を示す。この結果から、Siは、飽和磁束密度を向上させる上で有効な添加物であるといえる。

また、試料No. 7～9の特性を比較すると、SiおよびCaの添加量の合計が最も少ない試料No. 7が最も低いコア損失および最も高い初透磁率(μ_i)を示すことから、SiおよびCaを複合添加する場合にも適切な添加量があると推察される。

【0040】

(第3実施例)

第1実施例と同様の工程により、表3に示す組成を有するフェライトコアを作製するとともに、第1実施例と同様に特性等を測定した。その結果を表3に併せて示す。

【0041】

【表3】

試料No.	副成分	添加量 (ppm)	Bs (mT)	Pcv (kW/m ³)	B.Temp. (°C)	μ_i	備考
10	Nb ₂ O ₅	200	510	951	100	890	第2副成分
11	ZrO ₂	500	502	901	100	1017	
12	Ta ₂ O ₅		508	963	100	949	
13	In ₂ O ₅		505	1117	100	910	
14	Ga ₂ O ₅		500	1211	100	845	
15	SnO ₂	1000	499	1089	100	844	第3副成分
16	TiO ₂	3000	494	1045	100	789	
17	GeO ₂	200	499	939	100	952	第4副成分
18	V ₂ O ₅	500	513	1201	100	703	

焼成: 1350°C、酸素分圧1%

Bs: 飽和磁束密度(100°C)

Pcv: ボトム温度におけるコア損失(100kHz、200mT)

B.Temp.: ボトム温度

μ_i : 初透磁率(25°C)

他成分: Fe₂O₃: 65 mol%

MnO: 19 mol%

ZnO: 14 mol%

NiO: 1 mol%

LiO_{0.5}: 1 mol%

SiO₂: 100 ppm

CaCO₃: 1500 ppm

Nb₂O₅: 200ppm

* SiO₂の含有量とCaCO₃の含有量との重量比=0.07

【0042】

表3に示すように、第2副成分 (Nb_2O_5 , ZrO_2 , Ta_2O_5 , In_2O_5 , Ga_2O_5)、第3副成分 (SnO_2 , TiO_2) または第4副成分 (GeO_2 , V_2O_5) を添加しても、490mT以上の飽和磁束密度および1300kW/m³以下のコア損失 (P_{cv}) を兼備することができることがわかった。特に、第2副成分としての Nb_2O_5 , ZrO_2 , Ta_2O_5 を添加した場合、および第4副成分としての GeO_2 を添加した場合には、500mT近傍の飽和磁束密度および1000kW/m³以下のコア損失 (P_{cv}) を兼備することができる。また、第4副成分としての V_2O_5 を添加した場合には、513mTという非常に高い飽和磁束密度を得ることができる。

そして、第2副成分 (Nb_2O_5 , ZrO_2 , Ta_2O_5 , In_2O_5 , Ga_2O_5)、第3副成分 (SnO_2 , TiO_2) または第4副成分 (GeO_2 , V_2O_5) を添加しても、ボトム温度を所望の範囲内に設定することができること、さらには700以上の初透磁率 (μ_i) を得ることができることがわかった。

【0043】

(第4実施例)

焼成温度を1300℃とし、かつ第4副成分 (P換算でのPの化合物、 MoO_3 , GeO_2 , Bi_2O_3 , Sb_2O_3 , V_2O_5) を添加した以外は第1実施例と同様の工程により、表5に示す組成を有するフェライトコアを作製した。第1実施例と同様に特性等を測定した結果を表4に併せて示す。なお、Pを除く第4副成分は酸化物として、Pについてはリン酸カルシウムとして添加した。表4中、PについてはP換算での添加量を示している。また、焼成温度を1300℃とするが第4副成分を添加していないフェライトコアの特性、第3実施例で作製した V_2O_5 を添加した試料No. 18 (焼成温度を1350℃) の特性も、比較の便宜のために表4に併せて示す。なお、表4中に示した試料の焼成時間はいずれも5時間、焼成時の酸素分圧は0.5%である。

【0044】

【表 4】

試料No.	第4副成分	添加量 (ppm)	相対密度 (%)	平均結晶粒径 (μm)	Bs (mT)	Pcv (kW/m^3)	B.Temp. ($^{\circ}\text{C}$)	μi	焼成温度 ($^{\circ}\text{C}$)	酸素分圧 (%)
19	なし	—	95.5	10	488	898	100	1343	1300	0.5
20	P換算 ($\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$)	20	96.8	15	501	912	100	970		
21	MoO_3	200	97.3	15	510	1086	100	869		
22	GeO_2	500	95.6	12	494	927	100	1023		
23	Bi_2O_3	500	96.1	17	501	1137	90	1039		
24	Sb_2O_3	1000	97.3	13	508	978	100	1086		
25	V_2O_5	500	96.0	14	496	1050	100	1052	1350	1
18	V_2O_5	500	—	—	513	1201	100	703		

Bs : 飽和磁束密度 (100°C)Pcv : ボトム温度におけるコア損失 (100kHz , 200mT)

B.Temp. : ボトム温度

 μi : 初透磁率 (25°C)他成分 : Fe_2O_3 : 65 mol% MnO : 19 mol% ZnO : 14 mol% NiO : 1 mol% $\text{LiO}_{0.5}$: 1 mol% SiO_2 : 100 ppm CaCO_3 : 1500 ppm Nb_2O_5 : 200ppm* SiO_2 の含有量と CaCO_3 の含有量との重量比 = 0.07

【0045】

第4副成分を含有しない試料No. 19の飽和磁束密度が488mTであるのに対し、第4副成分を含有する試料No. 20～25はいずれも490mT以上の飽和磁束密度 (B_s) を示す。しかも、第4副成分を添加した試料No. 20～25はいずれも1300kW/m³以下のコア損失 (P_{cv}) を得ている。よって、第4副成分の添加は、コア損失 (P_{cv}) の上昇を抑えつつ、飽和磁束密度 (B_s) を向上させる上で有効であるといえる。特に、MoO₃を200ppm添加した試料No. 21、Sb₂O₃を1000ppm添加した試料No. 24については、1300℃という比較的低温な焼成温度においても、500mT近傍の高い飽和磁束密度 (B_s) を示しつつ、1100kW/m³以下のコア損失 (P_{cv}) を得ている。

また、ボトム温度 (B.Temp.) に着目すると、第4副成分を添加した場合も、ボトム温度を100℃という所望の範囲内の温度に設定することができることがわかる。さらに、初透磁率 (μ_i) についても、本発明による実施例は、従来例と同等の値を得ていることがわかる。

【0046】

次に、試料No. 25と試料No. 18との比較を行う。両者は、焼成条件が異なる以外は同一の条件で作製されたものである。1350℃で焼成された試料No. 18の方が、高い飽和磁束密度 (B_s) を得ていることを鑑みると、焼成温度を高くすることは飽和磁束密度 (B_s) を向上させる上では有利であるといえる。その一方で、焼成温度が高くなると、コア損失 (P_{cv}) が大きく、また初透磁率 (μ_i) が低下する傾向があると伺えることから、低損失、高飽和磁束密度 (B_s) および高い初透磁率 (μ_i) という特性を兼備したフェライト材料を得るためには、比較的低い温度で焼成された場合にも、高い飽和磁束密度 (B_s) を示すことが重要である。

ここで、表4に示したように、第4副成分を添加した試料No. 20～25はいずれも1300℃という比較的低温な焼成温度においても、490mT以上という高い飽和磁束密度 (B_s) を得ていることから、第4副成分はいずれも焼結助剤として有効に機能することがわかった。

以上の結果から、第4副成分は焼結助剤として有効であり、第4副成分を添加

することによって、焼成温度が 1300°C の場合であっても、95%以上の相対密度、 490 mT 以上の飽和磁束密度 (B_s) および 1200 kW/m^3 以下のコア損失 (P_{cv}) を達成することができることがわかった。また、第4副成分を添加した場合にも、ボトム温度を所望の温度範囲内 ($60\sim130^{\circ}\text{C}$) に設定することができることも確認できた。

【0047】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、一般的なトランス等が使用される温度帯域における飽和磁束密度が高く、かつ損失が低いフェライト材料を得ることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 100℃近傍の高温域における飽和磁束密度が高く、かつ損失が低いフェライト材料を提供する。

【解決手段】 Fe_2O_3 : 62～68mol%、 ZnO : 12～20mol%、 NiO : 5mol%以下（但し、0を含まず）、 $\text{LiO}_{0.5}$: 4mol%未満（但し、0を含まず）、残部実質的に MnO を主成分とする焼結体とする。このように、所定量の Ni および Li をともに含有させることにより、高温域における飽和磁束密度が向上する。この焼結体によれば、100℃における飽和磁束密度が480mT以上（測定磁界: 1194A/m）、コア損失の最小値が1300kW/m³以下（測定条件: 100kHz、200mT）、コア損失が最小値を示す温度であるボトム温度が60～130℃という特性を得ることができる。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 3 - 1 9 5 3 9 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 3 0 6 7]

- | | |
|----------|---------------------|
| 1. 変更年月日 | 1 9 9 0 年 8 月 3 0 日 |
| [変更理由] | 新規登録 |
| 住 所 | 東京都中央区日本橋1丁目13番1号 |
| 氏 名 | ティーディーケイ株式会社 |
| | |
| 2. 変更年月日 | 2 0 0 3 年 6 月 2 7 日 |
| [変更理由] | 名称変更 |
| 住 所 | 東京都中央区日本橋1丁目13番1号 |
| 氏 名 | T D K 株式会社 |